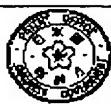


(19)



JAPANESE PATENT OFFICE

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11) Publication number: 06238655 A  
(43) Date of publication of application: 30.08.1994

(51) Int. Cl B29B 7/82  
B29B 7/90, B29B 11/10, B29B 11/16  
// B29K105:12

(21) Application number: 05028010  
(22) Date of filing: 17.02.1993

(71) Applicant: MITSUBISHI KASEI CORP  
(72) Inventor: MORITA KAZUMASA  
WATANABE HIROYASU

(54) PRODUCTION OF THERMOPLASTIC RESIN COMPOSITION

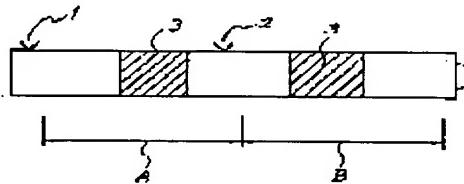
(57) Abstract:

PURPOSE: To reduce the cutting of a strand or the generation of eye mucus and to enhance production efficiency by holding the temp. of a resin after the supply of a filler to specific temp. or higher.

CONSTITUTION: A thermoplastic resin is supplied from the first feeder 1 of a screw extruder to be melted and a filler is supplied from a second feeder 2 to be kneaded with the molten resin so that the content of the filler is set to 15wt.% or more. In this case, the temp. of the resin after the supply of the filler is held to (Tm-40°C or higher (Tm; the m.p. of the resin). As

the filler, a reinforcing material such as a glass fiber or a carbon fiber and a filler such as talc, kaolin or silica are designated. As the thermoplastic resin, engineering plastic such as polyamide or polyester is pref. The thermoplastic resin is supplied from the first feeder 1 and melted in the zone 3 before the second feeder 2 by high shearing force.

COPYRIGHT: (C)1994,JPO&Japio



(19)日本国特許庁 (JP)

(12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開平6-238655

(43)公開日 平成6年(1994)8月30日

(51)Int.Cl. <sup>5</sup>	識別記号	府内整理番号	F I	技術表示箇所
B 29B 7/82		9350-4F		
7/90		9350-4F		
11/10		9350-4F		
11/16		9350-4F		
// B 29K 105:12				

審査請求 未請求 請求項の数 2 O L (全 4 頁)

(21)出願番号 特願平5-28010

(22)出願日 平成5年(1993)2月17日

(71)出願人 000005968

三菱化成株式会社

東京都千代田区丸の内二丁目5番2号

(72)発明者 守田 和正

北九州市八幡西区黒崎城石1番1号 三菱  
化成株式会社黒崎工場内

(72)発明者 渡邊 浩康

北九州市八幡西区黒崎城石1番1号 三菱  
化成株式会社黒崎工場内

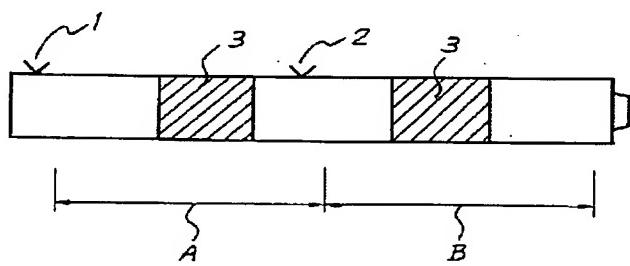
(74)代理人 弁理士 長谷川 曜司

(54)【発明の名称】 熱可塑性樹脂組成物の製造方法

(57)【要約】

【構成】 スクリュー押出機の第1フィーダーから熱可塑性樹脂を供給し、溶融後、第2フィーダーからフィラーを供給して溶融混練することからなるフィラー含有量15重量%以上の熱可塑性樹脂組成物の製造方法において、フィラー供給後の樹脂温度を( $T_m - 40$ )℃以上( $T_m$ は当該樹脂の融点)に保持することを特徴とするポリアミド、ポリエステル、ポリフェニレンサルファイド等の熱可塑性樹脂組成物の製造方法。

【効果】 本発明の方法によれば、フィラー含有量の多い樹脂組成物を押出溶融混練するときにストランド切れや目ヤニ発生が少なくなり、生産効率が大幅に向上する。



## 【特許請求の範囲】

【請求項1】スクリュー押出機の第1フィーダーから熱可塑性樹脂を供給し、溶融後、第2フィーダーからフィラーを供給して溶融混練することからなるフィラー含有量15重量%以上の熱可塑性樹脂組成物の製造方法において、フィラー供給後の樹脂温度を( $T_m - 40$ )℃以上( $T_m$ は該熱可塑性樹脂の融点)に保持することを特徴とする熱可塑性樹脂組成物の製造方法。

【請求項2】スクリュー押出機の第1フィーダーから熱可塑性樹脂を供給し、溶融後、第2フィーダーからフィラーを供給して溶融混練することからなるフィラー含有量15重量%以上の熱可塑性樹脂組成物の製造方法において、フィラー供給後の樹脂温度を( $T_m - 40$ )℃以上( $T_m$ は該熱可塑性樹脂の融点)に保持し、かつ第2フィーダー以降のバレルを強制冷却することを特徴とする熱可塑性樹脂組成物の製造方法。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【産業上の利用分野】本発明は熱可塑性樹脂にガラス繊維等のフィラーを比較的多く混合した樹脂組成物を押出溶融混練により製造する方法に関する。詳しくはストランド切れや目ヤニ発生を抑制した押出溶融混練によるフィラー含有熱可塑性樹脂組成物の製造方法に関する。

## 【0002】

【従来の技術】熱可塑性樹脂にガラス繊維等のフィラーを混合することは周知であり、その混合方法の一つとして押出溶融混練がある。一般的には押出溶融混練では第1フィーダーから熱可塑性樹脂を供給し、スクリューエレメントをニーディングディスクや逆フライト等にして高剪断力をかけて樹脂を溶融させ、次いで第2フィーダーからフィラーを供給し、更にスクリューエレメントを再びニーディングディスクまたは逆フライト等にして高剪断力をかけて混練する。

【0003】ここで、通常は、第1フィーダーから供給した樹脂の温度は $T_m \sim (T_m + 10)$ ℃程度( $T_m$ は樹脂の融点)であり、これに、第2フィーダーから多量のフィラーを供給すると、樹脂温度は一次的に( $T_m - 50$ )～( $T_m - 60$ )℃まで低下する。これに更に混練のために剪断力をかけると、発熱により樹脂温度は急激に上昇する。

## 【0004】

【発明が解決しようとする課題】従来は、かかる押出溶融混練においては、比較的多量のフィラーを熱可塑性樹脂に溶融混練するときは、ストランド切れや発生した黒色異物(通称、目ヤニ)の除去のための運転停止が多く、生産性向上の障害となっていた。

## 【0005】

【課題を解決するための手段】本発明者らは上記課題について鋭意検討した結果、フィラー供給後に樹脂温度が大きく低下することがストランド切れや目ヤニ発生の原

10

因であることを見いだし本発明に到達した。すなわち、本発明の要旨は、スクリュー押出機の第1フィーダーから熱可塑性樹脂を供給し、溶融後、第2フィーダーからフィラーを供給して溶融混練することからなるフィラー含有量が15重量%以上の熱可塑性樹脂組成物の製造方法において、フィラー供給後の樹脂温度を( $T_m - 40$ )℃以上( $T_m$ は当該樹脂の融点)に保持することを特徴とする熱可塑性樹脂組成物の製造方法に存する。

10

【0006】以下、本発明を詳細に説明する。本発明の対象となる樹脂組成物は、熱可塑性樹脂に15重量%以上のフィラーを混合した樹脂組成物である。従来法では、フィラーを15重量%以上添加する場合には、添加直後の樹脂温度の低下が大きく、ストランド切れや目ヤニ生成の原因となっていた。本発明は特にフィラーの含有量が30重量%以上のときに効果が顕著である。

20

【0007】本発明で用いられるフィラーとしてはガラス繊維、炭素繊維などの補強剤、タルク、カオリン、シリカ、アルミナなどの充填剤が挙げられる。特にガラス繊維の場合に本発明を適用すると特に効果的である。本発明で用いられる熱可塑性樹脂としては、エンジニアリングプラスチックとして用いられる樹脂が挙げられ、具体的にはポリアミド、ポリエステル、あるいはポリフェニレンサルファイド等が好適に用いられる。

30

【0008】ポリアミドとしては、3員環以上のラクタム、重合可能なω-アミノ酸、二塩基酸とジアミンなどの重縮合によって得られるポリアミドが用いられる。具体的にはナイロン-4, 6, 7, 8, 11, 12, 6, 6, 6, 9, 6, 10, 6, 11, 6, 12, 6T, 6/6, 6, 6/12, 6/6T等のポリアミドが例示できる。

40

【0009】ポリエステルとしては、ポリエチレンテレフタレート、ポリエチレンナフタレート、ポリプロピレンテレフタレート、ポリブチレンテレフタレート、ポリヘキサメチレンテレフタレート、ポリシクロヘキサンジメチレンテレフタレート、ポリ(エチレンテレフタレート/エチレンイソフタレート)共重合体などが例示できる。

40

【0010】本発明は特に脂肪族ポリアミドのときに効果が顕著であり、その中でもナイロン-6のときが好ましい。本発明で用いられる押出機としては一軸スクリュー押出機、二軸同方向回転スクリュー押出機、二軸異方向回転スクリュー押出機等の公知のサイドフィーダーを有するスクリュー押出機が用いられる。一般に、スクリュー押出機においては、スクリュー押出機で樹脂温度を上昇させる要因としては主として、バレルからの熱伝導と樹脂にかかる剪断力による発熱があり、前者はバレル温度によって、後者はスクリュー構成やスクリュー回転数によって制御される。

50

【0011】本発明では、熱可塑性樹脂を第1フィーダーから供給し、第2フィーダーまでに高剪断力をかけて

溶融させる。第2フィーダーまでの滞留時間は常法に従って適当に定めることができ、通常10～120secであり、また、フィラー供給前の樹脂最高温度は、通常、(T<sub>m</sub>+10)～(T<sub>m</sub>+40)℃の範囲が好ましい。

【0012】本発明においては次いで第2フィーダーからフィラーを供給するが、その際に樹脂温度が一次的に低下する。本発明の特徴は、このフィラー添加後の樹脂温度を(T<sub>m</sub>-40)℃、好ましくは(T<sub>m</sub>-30)℃以上に保持すること、すなわち、樹脂温度がこの温度を下回らないようにすることにより、ストランド切れやヤニの発生を抑制しうる点にある。

【0013】具体的には、ナイロン-6の場合は、融点が約225℃であるから、フィラー添加後の樹脂温度を185℃以上、好ましくは195℃以上とする。ナイロン-6の場合は、T<sub>m</sub>が約265℃であるから、フィラー添加後の樹脂温度を225℃以上、好ましくは235℃以上とする。ポリブチレンテレフタレートの場合には、T<sub>m</sub>が約225℃であるから、フィラー添加後の樹脂温度を185℃以上、好ましくは195℃以上とする。ポリエチレンテレフタレートの場合はT<sub>m</sub>が約260℃であるから、フィラー添加後の樹脂温度を220℃以上、好ましくは230℃以上とする。ポリフェニレンサルファイドはT<sub>m</sub>が約283℃であるから、フィラー添加後の樹脂温度を243℃以上、好ましくは253℃以上とする。

【0014】フィラー添加後の樹脂最低温度を上記範囲とするには、通常、第2フィーダー直前の樹脂温度を高めに設定しておく必要があり、具体的には第2フィーダーまでのバレル設定温度を高くする方法やスクリュー回転数を大きくして剪断力を大きくする方法等が挙げられる。また、添加するフィラーを予め加熱しておくことにより樹脂最低温度を上記範囲とすることもできる。

【0015】一方、第1フィーダーから樹脂を供給して溶融混練し、そのまま更に第2フィーダーからフィラーを供給し、その後高剪断力をかけて混練した場合、最高樹脂温度が樹脂の分解温度以上とならないように押出機全体のバレル温度やスクリュー構成や回転数を調節する必要がある。これに対し、従来は、バレル設定温度を樹脂の融点より高い温度とし、樹脂温度が上がり過ぎないようにスクリューの回転数等を制御していた。

【0016】しかし、フィラー供給後の樹脂温度をT<sub>m</sub>-40℃以上とすると、高剪断力をかけて樹脂とフィラーを混練するときに、発熱のため、かかる従来法では樹脂温度が高くなりすぎるおそれがある。許容される樹脂の最高温度は、樹脂の種類や滞留時間により異なるが、一般的に、(T<sub>m</sub>+150)℃を越えると樹脂の分解量が多くなり好ましくない。

【0017】具体的には、ナイロン-6を例に取れば、ナイロン-6は350℃以上になると分解が急速に進

む。そのため、ナイロン-6の場合は、樹脂温度が350℃以上の時間を極力短くする必要がある。そこで、本願第2の発明では、第2フィーダー以後のフィラー供給後に相当するバレルを強制冷却して除熱することにより樹脂温度が高くなり過ぎるのを防止する必要がある。バレルの強制冷却の方法としては当業者に周知の方法であれば特に制限はないが、水冷が好ましい。また、この際の冷却温度は、通常、バレル設定温度がT<sub>m</sub>以下となるようにするのが好ましい。

【0018】従来は、押出機のバレル設定温度は樹脂の融点(T<sub>m</sub>)以上とするのが一般的であった。すなわち、バレル設定温度がT<sub>m</sub>以下では樹脂がバレル内表面で凝固するおそれがあるので不適当と考えられていた。しかし、本発明者らが鋭意検討した結果、剪断力のため樹脂温度が高くなっているので、第2フィーダー後のバレル設定温度をT<sub>m</sub>以下としても凝固の問題は起こらず、むしろ樹脂最高温度を低くする効果があるので好ましいことが判明した。

【0019】ここで、バレル設定温度とは、バレル加熱用ヒーターの内部温度である。通常、バレル加熱用ヒーターは温度制御のため、バレル外表面から5～10mm程度離れたヒーター内部を熱電対で温度測定している。具体的には、ナイロン-6(T<sub>m</sub>=約225℃)を例にとれば、第2フィーダー後のバレル設定温度を200℃以下、特に150～100℃とするのが好ましい。第2フィーダーから押出機出口までの滞留時間は、常法に従って任意に定めることができ、通常10～120sec程度である。

【0020】

【実施例】以下、本発明を実施例により詳細に説明するが、本発明はその要旨を越えない限り実施例に限定されるものではない。

実施例1～2、比較例1～2

ナイロン-6(三菱化成(株)製、ノバミッド1015：ノバミッドは登録商標：融点225℃)にガラス繊維(長さ3mm、径13μm)を45重量%添加した樹脂組成物を製造した例を示す。

【0021】押出機として全長2240mm、L/D2.5.2(サイドフィーダーまでが1080mm)の2軸スクリュー押出機(ウェルナー社製、ZSK-90M240-2)を用いた。図1に、この2軸スクリュー押出機の概略図を示す。図中1は第1フィーダー、2は第2フィーダーを表わす。表-1にバレルの設定温度(第2フィーダーまでを前半、第2フィーダー後を後半とする)、スクリュー回転数、ガラス繊維添加後の樹脂最低温度、樹脂の発熱最高温度、樹脂の出口温度および24時間あたりのストランド切れの回数を示す。

【0022】比較例1は、従来から一般的に行われている製造条件で行なった場合である。実施例1は前半のバレル設定温度を高くし、かつスクリュー回転数を上げて

剪断力を大きくすることにより、ガラス繊維添加後の樹脂の最低温度を高くし、更に後半を水冷して、バレル設定温度を100℃にした例である。実施例2はスクリューアー回転数を上げて、樹脂最低温度を高くしたが、水冷を行わなかった例である。

【0023】比較例2は後半の水冷を行ったが、スクリューアー回転数を上げておらず、樹脂最低温度がTm-40\*

\* ℃未満である例である

これらからわかるように、ストランド切れ等を防ぐには樹脂最低温度を高くすることが肝要であり、後半を冷却すると、より効果的であることがわかる。

#### 【0024】

#### 【表1】

表-1

	バレル設定(℃)		回転数 (rpm)	樹脂温度(℃)			ストランド 切れ
	前半	後半		最低	最高	出口	
実施例1	300	100	230	199	368	315	0回/24Hr
実施例2	280	260	230	198	370	368	6回/24Hr
比較例1	280	260	180	170	355	350	12回/24Hr
比較例2	300	100	180	175	320	290	10回/24Hr

#### 【0025】

【発明の効果】本発明の方法によれば、フィラー含有量の多い樹脂組成物を押出溶融混練するときにストランド切れや目ヤニ発生が少なくなり、生産効率が大幅に向上的する。

#### 【図面の簡単な説明】

【図1】図1は、実施例で用いた2軸スクリュー押出機※

※の図である。

#### 20 【符号の説明】

- 1 第1フィーダー
- 2 第2フィーダー
- 3 剪断力をかけた帯域
- A 第2フィーダーまでの前半のバレル
- B 第2フィーダー以降の後半のバレル

【図1】

